# PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number :

2004-276478

(43)Date of publication of application: 07.10.2004

(51)Int.CI.

B29C 70/06 C08J 5/24 C08K 7/02 C08L101/00 // B29K105:08 B29L 9:00

(21)Application number: 2003-072760

(71)Applicant: POLYMATECH CO LTD

(22)Date of filing:

17.03.2003

(72)Inventor: KIMURA TORU

SHIMOYAMA NAOYUKI

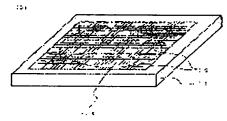
**HIDA MASAYUKI** 

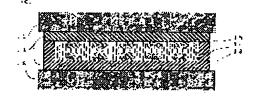
# (54) COMPOSITE POLYMER MATERIAL MOLDING AND ITS PRODUCTION METHOD

#### (57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a molding of a threedimensionally structure-controlled, high-performance composite polymer material and a practical method for producing the molding. SOLUTION: By applying a magnetic field to a polymer composition in which a fibrous cloth is arranged in parallel to a surface, and fibers are incorporated into a polymer material, the fibers are magnetized to be oriented in a given direction. After that, the polymer composition is cured or solidified and molded into a prescribed shape.







#### **LEGAL STATUS**

[Date of request for examination]

16.03.2006

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]



JP 2004-276478 A 2004.10.7

(19)日本国特許庁(JP)

# (12)公開特許公報(A)

(11)特許出願公開番号

特開2004-276478 (P2004-276478A)

(43)公開日 平成16年10月7日(2004.10.7)

(51) Int. C1. 7		Fl			テーマコ	ード (参考)
B 2 9 C 70/	06	B 2 9 C	67/14	G	4 F O 7	,
CO8J 5/	24	C 0 8 J	5/24	CFE	4 F 2 0	_
C08K 7/	02	C08K	7/02		4 J 0 0	2
CO8L 101/	00	C 0 8 L	101/00			
// B 2 9 K 105:	08	B 2 9 K	105:08			
審査請求	未請求 請求項の	数 3 OL			(全12頁)	最終頁に続く
(21)出願番号	特願2003-72760(	(P2003-72760)	(71) 出窟	〔人 00023702	O	
(22) 出願日 平成15年3月17日(2003.3.17)			ポリマテ	ック株式会社		
				東京都中	央区日本橋本町の	4丁目8番16号
特許法第30条第1項適用申請有り 平成14年9月18日 社			(74) 代理	人 10006875	5	

団法人高分子学会発行の「高分子学会予稿集 51巻 1 4号」に発表

弁理士 恩田 博宜

(74)代理人 100105957

弁理士 恩田 誠

(72) 発明者 木村 亨

東京都北区田端5丁目10番5号 ポリマテッ

ク 株式会社R&Dセンター内

(72)発明者 下山 直之

東京都北区田端5丁目10番5号 ポリマテッ

ク 株式会社R&Dセンター内

最終頁に続く

#### (54) 【発明の名称】高分子複合材料成形体およびその製造方法

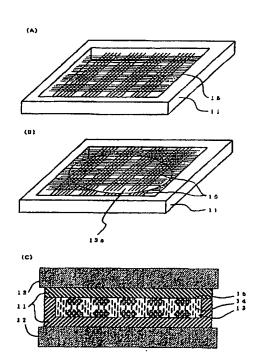
### (57)【要約】

【課題】三次元に構造制御された高性能な高分子複合材 料成形体及びその実用的な製造方法を提供する。

【解決手段】繊維クロスが面と平行方向に配置され、繊 維が高分子材料中に配合された高分子組成物に、磁場を 印加することにより、繊維を磁化させて一定方向に配向 させた後、高分子組成物を硬化又は固化させて所定の形 状に成形する。

【選択図】

図 1



# 【特許請求の範囲】

## 【請求項1】

高分子中に繊維と繊維クロスを含有する高分子複合材料成形体において、繊維クロスが成 形体の面方向と平行になるように配置され、繊維が成形体の厚み方向と平行に配向されて なることを特徴とする高分子複合材料成形体。

## 【請求項2】

繊維および繊維クロスが、炭素繊維、金属繊維、ガラス繊維、セラミック繊維、有機繊維 より選ばれる少なくとも1種からなることを特徴とする請求項1に記載の高分子複合材料 成形体。

成形体の面方向と平行になるように繊維クロスが配置された金型中に、高分子中に炭素繊 維、金属繊維、ガラス繊維、セラミック繊維、有機繊維より選ばれる少なくとも1種の繊 維を含有する高分子組成物を注入して繊維クロスに含浸させ、さらに磁場を与え、成形体 の厚み方向に繊維を配向させた後に組成物を固化させて成形することを特徴とする請求項 1または請求項2に記載の高分子複合材料成形体の製造方法。

# 【発明の詳細な説明】

[0001]

# 【発明の属する技術分野】

本発明は、繊維が高分子材料中に配合されて複合化された高分子複合材料成形体及びその 製造方法に関するものである。より具体的には、繊維からなる繊維クロスが成形体の面方 向に平行になるように配置され、さらに別の繊維が成形体の厚み方向に平行に配向された 高分子複合材料成形体及びその製造方法に関するものである。

# [0002]

## 【従来の技術】

従来、マトリックスとしての高分子材料に、ガラス繊維、炭素繊維、金属繊維、アラミド 繊維、ポリベンザゾール繊維などの繊維が配合された高分子複合材料成形体が広く知られ ている。また、炭素繊維、ガラス繊維などの長繊維の織物もしくは一方向に引き揃えた繊 維を高分子材料に含浸したプリプレグ、あるいは、それを積層して硬化した成形体も広く 知られている。例えば、弾性率や強度等の機能性を向上させた繊維強化樹脂や繊維強化ゴ ムが、宇宙、航空機、自動車、電気製品やスポーツ、レジャー用品などに幅広く利用され ている。

#### [0003]

また、繊維織物に高分子材料を含浸したプリプレグ、あるいはそれを積層して硬化した板 状の高分子複合材料成形体は、その面方向に沿って伸びた繊維によって、面方向の弾性率 や強度等の機械的性質、熱膨張係数や熱伝導率等の熱的性質などを向上させることが可能 である。しかしその場合、厚み方向の前記機械的性質及び熱的性質を向上させることでき なかった。

# [0004]

一方、最近の複雑な機構部品などにおいては、弾性率や強度などの機械的性質、熱膨張係 数や熱伝導率などの熱的性質、さらには光学的性質や電気的性質などの各種機能が、成形 体の面方向のみならず、厚み方向にも向上された新しい高分子複合材料成形体の実現が切 望されている。

### [0005]

面方向と厚み方向の両方に繊維を配向させた高分子複合材料成形体を製造する方法として は、面方向及び面と垂直方向に三次元に繊維を編んでなる織物および繊維強化プラスチッ クパネルの製造方法(特許文献1参照)や、高含浸性三次元織物、並びに該織物を用いた 炭素繊維強化複合材料及びセラミックス系複合材料 (特許文献2参照)等が報告されてお り、一部実現化されている。

# [0006]

#### 【特許文献1】

10

30

40

特開平6-339997号公報

【特許文献2】

特開平9-207236号公報

[0007]

【発明が解決しようとする課題】

しかしながら、上記の報告された織物は、高精度な製造装置が必要であり、製造コストが高いものであった。さらに高分子複合材料成形体を作製する上では、あらかじめ繊維が三次元に織り込まれた織物に高分子材料を含浸させるため、高分子材料と織物の間に空隙(ボイド)が生じてしまった。この問題を回避する為にはさらなる設備の改良が必要となり、生産性やコストの上でも問題があった。

[0008]

そのため、より簡易的な製造方法で複合材料の内部に空隙が生ずることなく、三次元に各種性能を向上させた実用的な複合材料が期待されている。

本発明は、これらの課題に鑑みてなされたものであり、その目的は、高分子材料中に配合され複合化される繊維を繊維クロスと直交する方向に配向させ、三次元的に機能を向上させた高分子複合材料成形体及びその製造方法を提供することにある。

[0009]

【課題を解決するための手段】

上記課題を解決するために、本発明者らは、繊維を配合させた高分子材料中に、その繊維とは別に繊維クロスが配置されたものであっても、繊維を繊維クロスの面に対して垂直方向に配向させることが可能であることを見出した。さらには、繊維を配向させた高分子材料を固化して得られる高分子複合材料成形体は、機械的特性や熱的特性などの性質が、成形体のどの方向においても向上させることが可能となる高分子複合材料成形体およびその製造方法を見出し、本発明に到達した。

[0010]

すなわち、請求項1に記載の発明は、高分子材料中に繊維と繊維クロスを含有する高分子複合材料成形体であって、繊維クロスが成形体の面方向と平行になるように配置され、成形体の厚み方向に平行に繊維が配向されてなることを特徴とする。本発明は、高分子材料中の繊維クロスの面と垂直方向に繊維を配向させた成形体であるため、機械的特性や熱的特性などの性質が、成形体のどの方向においても向上させることが可能となる。

[0011]

請求項2に記載の発明は、請求項1に記載の発明において、繊維および繊維クロスが、炭素繊維、金属繊維、有機繊維より選ばれる少なくとも1種からなることを特徴とする。本発明はこれらの繊維を用いることにより、成形体の機械的特性や熱的特性などの性質を向上させることが可能となる。

[0012]

請求項3に記載の発明は、請求項1又は請求項2のいずれかに記載の発明において、高分子 子複合材料成形体の面方向と平行になるように繊維クロスが配置された金型中に、高分子 中に炭素繊維、金属繊維、ガラス繊維、有機繊維より選ばれる少なくとも1種の繊維を含 有する高分子組成物を注入して繊維クロスに含浸させ、さらに磁場を与え、成形体の厚み 方向に繊維を配向させた後に組成物を固化させて所定の形状に成形することを特徴とする 。本発明によって、磁場を用いて繊維クロスの面に対して垂直方向に繊維を配向させるこ とができ、機械的特性や熱的特性などの性質が、成形体のどの方向においても向上させる ことが可能となる。

[0013]

【発明の実施の形態】

本発明の高分子複合材料成形体は、高分子材料中に繊維と繊維クロスを含有する高分子複合材料成形体であって、繊維クロスが成形体の面方向と平行になるように配置され、繊維が成形体の厚み方向と平行に配向されてなることを特徴とする。繊維クロスと繊維は、高分子材料内で互いに直行して配置されている。

10

20

30

## [0014]

まず、繊維について説明する。

## <繊維>

繊維は、炭素繊維、ガラス繊維、金属繊維、セラミック繊維あるいは、有機繊維を用いる ことができる。炭素繊維は、例えばピッチ系やPAN系等の炭素繊維を用いることができ る。金属繊維は、強磁性金属以外の金属繊維を用いることが好ましく、例えば反磁性であ るSUS繊維を用いることができる。セラミック繊維としては、例えば酸化アルミニウム 、酸化チタン、窒化ケイ素、炭化ケイ素、ホウ酸アルミニウム、チタン酸カリウム等から なる繊維やウイスカーを用いることができる。有機繊維としては、例えばアラミド繊維、 ポリベンザゾール繊維、ポリエチレン繊維、脂肪族ポリアミド繊維、ポリイミド繊維、ポ リフェニレンサルファイド繊維、フェノール繊維、ポリオレフィン繊維、ビニロン繊維な どを用いることができる。

高分子材料に配合する繊維の長さや径については、特に限定するものではないが、高分子 [0015] 組成物の流動性や、繊維クロスへ含浸させる作業性等を考慮すると、繊維長は、好ましく は10mm以下であり、より好ましくは5mm以下、さらに好ましくは2mm以下である 短繊維を用いる。繊維の直径は 0 .  $1\sim30~\mu$  mが好ましい。得られる高分子複合材料成 形体の機能性を一層向上させるためには、一般的には繊維のアスペクト比(繊維の長さ/ 繊維の直径)が大きい方が好ましいが、繊維の繊維長が10mmよりも長くなると、高分 子材料中に均一に分散しにくくなり、また、粘度が上昇して成形性が悪化するので好まし くない。さらに、繊維長が長いほど繊維同士が絡み合い、繊維を一定方向に配向させにく くなる。なお、繊維の繊維長の下限は特に限定されるものではなく、また、繊維直径によ り異なるが、 $10\mu$ m以上であることが好ましく、より好ましくは $50\mu$ m以上である。 繊維の繊維長が $10\mu$ m未満であると、繊維の直径が $0.1\mu$ mの場合であってもアスペ クト比が100未満となり、得られる高分子複合材料成形体に機械的特性や熱的特性など の性質が発現されにくくなるため好ましくない。また、繊維の断面形状は、円形や楕円形 、多角形などのほか、複雑な形状のものも用いることができる。

## [0016]

高分子材料中の繊維は、磁場によって配向させるものであるため、繊維の異方性反磁性磁 化率 $\chi$  aが、 $1 \times 10^{-9}$ 以上であることが好ましい。異方性反磁性磁化率 $\chi$  aが $1 \times 1$ 0-9よりも小さいと、繊維を磁場によって一定方向に配向させることが困難となる。よ り好ましい異方性反磁性磁化率 χ  $_{\mathbf{a}}$ は、  $5 \times 10^{-9}$ 以上、さらに好ましくは  $1 \times 10^{-9}$ <sup>8</sup>以上である。繊維の異方性反磁性磁化率χ<sub>α</sub>が大きいほど、繊維を高度に磁場配向させ ることが容易となる。

## [0017]

ここで、異方性反磁性磁化率χ a とは、外部より磁場を印加することにより生じる、繊維 の繊維軸方向の磁化率 χ // から、繊維軸に対して垂直方向の磁化率 χ ェを差し引いた反 磁性磁化率の異方性を示す値(CGS単位系)である。この異方性反磁性磁化率χαが正 の値を示す繊維、例えば、炭素繊維、アラミド繊維、ポリベンザゾール繊維などは、磁場 雰囲気下で繊維軸が磁力線に沿って平行に配向され、また、この異方性反磁性磁化率χα の絶対値が大きくなればなるほど、磁場を印加することにより高度に一定方向に配向させ ることができる。一方、異方性反磁性磁化率χαが負の値を示す繊維、例えば、ポリエチ レン繊維などを用いると、磁力線に対して繊維軸が垂直となるように磁場が作用され、繊 維が磁力線の方向に対して垂直方向、すなわち磁力線に対する垂直面の不定方向へ配向さ れてしまい、任意の一定方向に配向させることができない。なお、異方性反磁性磁化率χ a は、磁気異方性トルク計、振動式磁力計、SQUID (超伝導量子干渉素子)、サスペ ンジョン法などの公知の方法で測定することができる。

## [0018]

<繊維クロス> 繊維クロスは、上記した炭素繊維、ガラス繊維、金属繊維、セラミック繊維あるいは、有

10

30

40

機繊維からなり、これら1種あるいは2種以上の繊維からなる織布、不織布を用いることができる。この繊維クロスの織布の製造方法は、紡糸装置を用いて編みこむ方法が一般的である。また、繊維クロスの不織布の製造方法は、繊維を加圧圧縮させることによるものが一般的である。さらに、繊維間に高分子材料を含浸させ固化させた織布、不織布を用いることもできる。

### [0019]

使用する繊維の繊維径や、繊維の織り込む密度は特に限定されるものではないが、繊維の生産性や取り扱い、高分子材料への配合などを考慮すると、実用的に好ましい繊維の直径は $0.1\sim30\mu$ mであり、繊維の織り込む密度は横糸および縦糸ともに、 $5\sim50$ 本/25mmが好ましい。繊維クロス繊維は短繊維を配合した高分子組成物が含浸されやすいように、空間をあけて編みこんでもよく、縦糸と横糸の編みこむ割合についても、適宜調整しても構わない。

## [0020]

このようにして作製された繊維クロスを高分子複合材料成形体の面方向に配置する手法としては、特に限定されるものではないが、成形する金型内部に繊維クロスを固定する部分を設けてもよい。好ましくは、固定用ピン等を用いて繊維クロスを固定することで、高分子組成物が流動しても、繊維クロスが動かないようにすることができる。

### [0021]

### <高分子材料>

次にマトリックスとしての高分子材料について説明する。

高分子材料としては、特に限定されるものではなく、目的とする高分子複合材料成形体の機械的性質、熱的性質、光学的性質、電気的性質、耐久性、信頼性などの要求性能に応じて、例えば、熱可塑性樹脂、熱可塑性エラストマー、各種の硬化性樹脂、架橋性ゴムなどを好適に用いることができる。

## [0022]

熱可塑性樹脂としては、例えばポリエチレン、ポリプロピレン、エチレンープロピレン共 重合体などのエチレンーαーオレフィン共重合体、ポリメチルペンテン、ポリ塩化ビニル 、ポリ塩化ビニリデン、ポリ酢酸ビニル、エチレンー酢酸ビニル共重合体、ポリビニルア ルコール、ポリビニルアセタール、ポリフッ化ビニリデンやポリテトラフルオロエチレン 等のフッ素樹脂、ポリエチレンテレフタレート、ポリブチレンテレフタレート、ポリエチ レンナフタレート、ポリスチレン、ポリアクリロニトリル、スチレンーアクリロニトリル 共重合体、ABS樹脂、ポリフェニレンエーテル及び変性PPE樹脂、脂肪族及び芳香族 ポリアミド類、ポリイミド、ポリアミドイミド、ポリメタクリル酸及びそのメチルアリー レンエステルなどのポリメタクリル酸アリーレンサルファイド類、ポリアクリル酸類、ポリカーボネート、ポリフェニレンサルファイド、ポリサルホン、ポリエーテルサルホン、ポリエーテルニトリル、ポリエーテルケトン、ポリケトン、液晶ポリマー、シリコーン樹 脂、アイオノマー等が挙げられる。

## [0023]

熱可塑性エラストマーとしては、例えばスチレンーブタジエン又はスチレンーイソプレン ブロック共重合体とその水添ポリマー、スチレン系熱可塑性エラストマー、オレフィン系 熱可塑性エラストマー、塩化ビニル系熱可塑性エラストマー、ポリエステル系熱可塑性エ ラストマー、ポリウレタン系熱可塑性エラストマー、ポリアミド系熱可塑性エラストマー 等が挙げられる。

### [0024]

硬化性樹脂としては、例えばエポキシ樹脂、ポリイミド樹脂、アクリル樹脂、ビスマレイミド樹脂、ベンゾシクロプテン樹脂、フェノール樹脂、不飽和ポリエステル樹脂、ジアリルフタレート樹脂、シリコーン樹脂、ウレタン樹脂、ポリイミドシリコーン樹脂、熱硬化型ポリフェニレンエーテル及び変性PPE樹脂等が挙げられる。

#### [0025]

架橋性ゴムとしては、例えば天然ゴム、ブタジエンゴム、イソプレンゴム、スチレンーブ

10

20

30

タジエン共重合ゴム、ニトリルゴム、水添ニトリルゴム、クロロプレンゴム、エチレンー プロピレンゴム、塩素化ポリエチレン、クロロスルホン化ポリエチレン、ブチルゴム及び ハロゲン化ブチルゴム、フッ素ゴム、ウレタンゴム、シリコーンゴム、液状ゴム等が挙げ られる。

# [0026]

これらの高分子材料のなかでも、エポキシ樹脂、不飽和ポリエステル樹脂、フェノール樹 脂、アクリル樹脂、ウレタン樹脂、ポリイミド樹脂、シリコーン樹脂及び液状ゴムよりな る群から選択される少なくとも1種の高分子材料を用いることが、耐熱性などの温度特性 や電気絶縁性の観点から好ましい。加えて、これらの高分子材料を用いると、繊維を混合 する際に低粘度の液体であるか、或いは加熱溶融時に低粘度化することができるため、高 分子材料に配合される繊維の配向制御が容易となる。より具体的には、液状のエポキシ樹 脂や不飽和ポリエステル樹脂、液状ゴムなどの高分子前駆体や溶融状態において低粘度の 高分子材料を用いることが好適である。

## [0027]

また、これらの高分子材料は、一種を単独で用いても、二種以上を組み合わせて用いても よく、さらに、これらの高分子材料から選択される複数の高分子材料からなるポリマーア ロイを使用しても差し支えない。なお、硬化性樹脂又は架橋性ゴムの架橋方法については 、特に限定されず、熱硬化法、光硬化法、湿気硬化法、放射線又は電子線照射法などの公 知の架橋方法を採用することができる。

## [0028]

# <高分子複合材料成形体>

高分子複合材料成形体は、上述した繊維クロスが高分子複合材料成形体の面方向と平行に なるように配置され、また、繊維が複合材料の厚み方向と平行になるように配向されるこ とを特徴とする。このように繊維クロスと繊維が高分子材料中で直交するように配置され ることにより、繊維としての繊維長さ方向の弾性率や強度などの様々な高機能性が成形体 のあらゆる方向に発揮される。

# [0029]

具体的には、炭素繊維やポリベンザゾール繊維の高い引張破断強度を利用することにより 、高分子複合材料成形体の強度を向上させ得る。また、炭素繊維やポリベンザゾール繊維 の繊維軸方向の高い弾性率を利用することにより、高分子複合材料成形体の特定方向の弾 性率を向上させることが可能となる。さらに、炭素繊維やポリベンザゾール繊維の繊維軸 方向の低熱膨張性を利用することにより、高分子複合材料成形体の特定方向の熱膨張係数 や寸法変化などを小さくしたりすることも可能となる。またこれらの特性は、成形体のす べての方向において均等になるように、繊維クロスや繊維の濃度を調整してもよく、ある いは、使用用途に合わせて、各方向の特性がそれぞれ異なるように、繊維クロスや繊維の 濃度を調整してもよい。

高分子複合材料成形体の形状については、特に限定されず、公知の形状を採用することが でき、例えば、立方体状、球状、円柱状、板状、フィルム状、棒状、チューブ状などの形 状が挙げられる。なお、高分子複合材料成形体は、成形体の部分的個所のみに繊維クロス が含まれるものであってもよいし、組成物中の繊維が部分的に一定方向に配向されたもの であってもよい。

## [0031]

高分子複合材料成形体は、弾性率や強度などの機械的性質、熱膨張係数、熱伝導率などの 熱的性質、電気的性質、光学的性質などの異方性機能が要求されるあらゆる用途の成形体 に応用することができる。例えば、高分子複合材料成形体は、機械部品、機構部品、自動 車部品、電気製品等に応用したり、電気製品や自動車製品のハウジング、基板、伝導ベル トなどの部品や異型成形体に応用することができる。

## [0032]

<製造方法>

20

10

30

40

10

20

30

40

50

本発明の高分子複合材料成形体の製造方法は、繊維クロスを高分子複合材料成形体の面方向に平行に配置した型に、繊維としての炭素繊維、金属繊維、ガラス繊維、セラミック繊維、有機繊維より選ばれる少なくとも1種の繊維が高分子材料中に配合された高分子組成物を含浸させる。次に、繊維クロスに含浸した高分子組成物に磁場を印加することにより、繊維を磁化させて、繊維クロスの面に対して垂直方向に配向させた後、高分子組成物を硬化又は固化させて所定の形状に成形することを特徴とする。

[0033]

(高分子組成物の調製)

高分子組成物は、上述した繊維を、例えば、ブレンダー、ミキサー、ロール、押出機などの公知の混合混練装置を用いて、上述した高分子材料中に配合することにより得ることができる。なお、混合分散する際には、減圧或いは加圧することにより、混入した気泡を除去する工程を加えることが好ましい。

[0034]

高分子材料中に配合される繊維の配合量は、特に限定されず、目的とする最終製品の要求性能などにより適宜決定されるが、高分子材料100重量部に対して0.01~50重量部であることが好ましい。繊維の配合量が多い程、得られる高分子複合材料成形体の異方性機能の向上が達成される。しかしながら、繊維の配合量が50重量部を越えると、高分子組成物の粘度が増大して流動性が損なわれ、繊維の配向制御が困難となるため好ましくない。また、繊維の配合量が0.01重量部よりも少ないと、得られる高分子複合材料成形体の機能性の向上効果が小さくなるため好ましくない。より好ましい繊維の配合量は、高分子材料100重量部に対して0.02~30重量部であり、さらに好ましくは0.05~20重量部である。

[0035]

また、高分子組成物には、必要に応じて他の充填剤や可塑剤、架橋剤、着色剤、安定剤、 溶剤などの少量の添加剤を併用しても差し支えない。

なお、高分子材料に対する繊維の濡れ性や接着性を向上させるために、繊維および繊維クロスの表面にあらかじめ脱脂や洗浄処理をしたり、紫外線照射処理、コロナ放電処理、プラズマ処理、火炎処理或いはイオン注入などの活性化処理や、シラン系やチタン系、アルミニウム系などの通常のカップリング剤やレゾルシンホルマリンラテックスなどで表面処理をすることが好ましい。その結果、さらに多量の繊維を高分子材料中に分散混合させやすくなる。

[0036]

また、揮発性の有機溶剤や反応性可塑剤を添加することによって、高分子組成物を低粘度化させて繊維の配合量を増大させたり、繊維と高分子材料との比重差を小さくすることにより高分子組成物中での繊維の沈降を防ぎ、配向を促進させたりすることもできる。

[0037]

(繊維クロスの配置)

繊維クロスは、高分子複合材料成形体を作製する金型内に、成形体の面方向と繊維クロスが平行になるように配置する。その後、繊維クロスに、高分子中に繊維を含有する高分子組成物を含浸させる。金型内に繊維クロスを数枚束ねて配置した後に、高分子組成物を流し込んで含浸させてもよく、あるいは、繊維クロスを一枚配置した後に高分子組成物を流し込んだ後に、さらに繊維クロスを配置する作業を繰り返すことで、含浸をさせてもよい。この際、減圧或いは加圧することにより、混入した気泡を除去する工程を加えることが好ましい。

[0038]

(配向)

高分子組成物の中の繊維は、外部より磁場を印加することにより磁化され、磁力線に対してその繊維軸が平行となるように配向される。これにより、任意の一定方向に繊維を配向させることができ、繊維の繊維軸方向の高弾性、低熱膨張性などの異方性特性を生かして、弾性率や強度などの機械的性質、熱的性質、光学的性質、電気的性質などの異方性機能

を有する高性能な高分子複合材料成形体を簡便に製造することができる。

より具体的には、例えば、板状の高分子複合材料成形体を成形する際に、その厚み方向に 繊維を配向させる場合、板状の成形体の面を挟むように、永久磁石や電磁石のN極とS極 を対向するように設置し、磁力線の向きが厚み方向に向くように磁場を印加することによ って、繊維を厚み方向に配向させることができる。そして、繊維を厚み方向に配向させた 状態で高分子組成物を硬化又は固化させることにより、厚み方向に繊維が配向された高分 子複合材料成形体を得ることができる。

磁場発生手段としては、特に限定されず、例えば、永久磁石、電磁石、コイルなどが好適 に用いられる。また、その磁場の強さを表す磁束密度は、特に限定されないが、0.1~ 30テスラであると、実用的で効果的な繊維の配向を達成することができる。また、繊維 が有する非常に弱い異方性反磁性磁化率 χ 。を利用して、一定方向に配向させるため、よ り強い磁束密度であることが好ましく、より好ましい磁束密度は0.5テスラ以上、さら に好ましくは2テスラ以上である。

なお、磁力線は必ずしも直線状でなくてもよく、曲線状や矩形であっても、或いは2方向 以上であっても構わない。また、高分子組成物の一部のみが磁場雰囲気下に配置されるよ うな構成であっても構わない。また、磁石については必ずしも両側に対向させる必要はな く、片側のみに配置した磁石によっても高分子組成物中の繊維を任意の一定方向に配向さ せることが可能である。さらに、高分子組成物に振動を加えたり、磁力線の方向を反転さ せたりすることにより、高分子組成物中の繊維の配向を促進させることもできる。

# [0042]

(高分子複合材料成形体の成形)

高分子複合材料成形体は、上述した高分子組成物を、各種硬化反応や冷却処理などの公知 の方法を利用して硬化又は固化させ、所定の形状に成形することにより得られる。

高分子複合材料成形体の成形方法については、特に限定されるものではなく、押出成形法 、射出成形法、圧縮成形法、トランスファー成形法、ブロー成形法、真空成形法、回転成 形法などが適用可能である。

## [0044]

以上の実施形態により発揮される効果を以下にまとめて記載する。

繊維クロスと繊維が高分子材料中に配合されて複合化された高分子複合材料成形体に おいて、繊維クロスと繊維が高分子材料中で直交するように繊維を配向させた。これによ り、高弾性率、高強度、耐熱性などの種々の優れた機能を有する繊維の特性を生かして、 成形体の全ての方向に特性向上させた高分子複合材料成形体を得ることができる。

## [0045]

繊維の繊維長を、10mm以下とした。これにより、高分子材料中に繊維を均一に分 散させることができるとともに、成形加工性を良好にすることができ、また、高分子組成 物中における繊維の配向制御が容易となる。

# [0046]

以下、実施例及び比較例を挙げて、前記実施形態をさらに具体的に説明するが、これらは 【実施例】 本発明の範囲を何ら制限するものではない。

# [0047]

高分子材料として不飽和ポリエステル樹脂(株式会社日本触媒製 エポラックG157) (実施例1) 100重量部に、炭素繊維(株式会社ペトカ製 メルブロンミルド(直径8 µm、長さ2 5μm)) 25重量部を混合し、真空脱泡して高分子組成物13αを調製した。

### [0048]

40

30

10

20

図1(A)~(C)に示すように、アルミニウム製の金型11における、フッ素樹脂コーティングされた成形凹部11a内に、炭素繊維クロス(日本グラファイトファイバー製グラノッククロスPF-XN05-130(目付130g/cm²、密度8本/cm、繊維直径10 $\mu$ m))を成形体の板面と平行に配置する(図1(A))。次に、上記で得られた高分子組成物13aを、成形凹部11a内に充填して含浸させ、さらに炭素繊維クロスをもう一枚上から重ねて含浸させた(図1(B))。その後、磁場発生手段としての磁石12のN極とS極が対向する磁束密度8テスラの磁場雰囲気下で、炭素繊維を炭素繊維クロスの面に対して垂直方向に十分に配向させた後(図1(C))、加熱硬化させて高分子材料を固化させ、板状の高分子複合材料成形体13を作製した。図2に高分子複合材料成形体13の断面である電子顕微鏡写真に示すように、得られた高分子複合材料成形体13中で、炭素繊維クロス15は板状の成形体の表面に沿って平行に配置され、炭素繊維14は、炭素繊維クロス15の面に対して垂直方向に配向していた。

[0049]

[0050]

(実施例2、実施例3)

炭素繊維の配合量をそれぞれ表1に示す配合量とした以外は、実施例1と同様の方法により、板状の高分子複合材料成形体13を作製した。得られた高分子複合材料成形体13中の炭素繊維14は、実施例1と同様に、繊維クロスの面と垂直方向に配向していた。

[0051]

[0052]

炭素繊維の配合部数を100重量部とした実施例3の場合、板状の高分子複合材料成形体13に対して面と垂直方向2の線膨張係数-3.6×10-5/°C、板状の高分子複合材料成形体13に対して面と平行方向Xの線膨張係数は6.0×10-5/°Cであった

[0053]

(比較例1)

比較用として、実施例の高分子組成物の代わりに、高分子材料としての不飽和ポリエステル樹脂(株式会社日本触媒製 エポラックG157)に炭素繊維を充填しないで用い、多は実施例と同様に、板状の高分子複合材料成形体を作製した。実施例1と同様に測定した線膨張係数の測定結果を表1に示す。

[0054]

実施例1と同様に、得られた各々の高分子複合材料成形体13の線膨張係数(JIS K7197)を測定したところ、炭素繊維14の軸平行方向2の高分子複合材料成形体13の線膨張係数は1. $1 \times 10^{-4}$ /°C、軸垂直方向Xの高分子複合材料成形体13の線膨張係数は6. $2 \times 10^{-5}$ /°Cであった。

[0055]

【表1】

20

10

40

-	4

<u> </u>	14 th	実施例1	実施例2	実施例3	比較例1
	単位	关心71	天が3010		
炭素繊維の配合部数	重量部	2 5	50	100	0
X方向の線膨張係数(面		6.81×	6.45×	6. 07×	6.22×
平行方向)	/℃	10-5	10-5	10-5	10-5
Y方向の線膨張係数(面	/90	7. 27×	7. 42×	5. 47×	1
平行方向)	/°C	10-5	10-5	10-5	10-5
2方向の線膨張係数(面	(92	7. 99×	2.76×	3. 64×	L
垂直方向)	/℃	10-5	10-5	10-6	10-4

10

20

# <実施例の効果>

比較例1は炭素繊維クロスと不飽和ポリエステル樹脂のみからなる高分子複合材料成形体 であり、線膨張係数においてX方向、Y方向については、膨張が抑えられている効果が認 められるが、乙方向については、膨張が抑えられていない。

# [0056]

一方、本発明の実施例1~実施例3の高分子複合材料成形体は、炭素繊維クロスが面方向 に配置され、炭素繊維が面と垂直方向に配向した高分子複合材料成形体であるため、線膨 張係数においてX方向、Y方向について膨張が抑えられていることに加えて、組成物中の 炭素繊維の配合部数が増加するほど、Z方向の膨張が抑えられていることが認められた。

#### [0057]

# 【発明の効果】

以上詳述したように、本発明は、繊維クロスが面方向に配置され、繊維が厚み方向に配向 された高分子複合材料成形体であるため、弾性率や強度などの機械的性質や、熱膨張係数 、熱伝導率などの熱的性質、光学的性質、電気的性質などの性質が成形体に対して三次元 的に全ての方向に向上された高分子複合材料成形体を提供することができる。

30

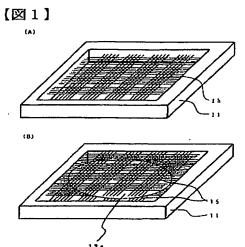
# 【図面の簡単な説明】

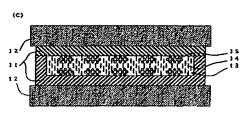
【図1】(A)~(C)高分子複合材料成形体の製造方法を示す要部断面図及び斜視図。

【図2】高分子複合材料成形体の断面を示す電子顕微鏡写真。

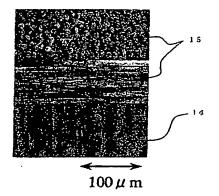
## 【符号の説明】

11・・・金型、12・・・磁場発生手段としての磁石、13・・・高分子複合材料成形 体、13a・・・高分子組成物、14・・・繊維、15・・・繊維クロス





[図2]



-----

フロントページの続き

(51) Int. Cl. 7 B 2 9 L 9:00 FΙ

B 2 9 L 9:00

テーマコード (参考)

(72)発明者 飛田 雅之 東京都北区田端5丁目10番5号 ポリマテック 株式会社R&Dセンター内 Fターム(参考) 4F072 AA02 AA04 AB02 AB08 AB09 AB10 AB11 AB14 AB15 AB22 AB28 AB29 AB33 AB34 AD01 AD02 AD03 AD04 AD05 AD06 AD07 AD08 AD09 AD13 AD22 AD23 AD38 AD41 AD42 AD43 AD44 AD45 AD46 AD47 AG03 AH02 AK03 AK14 AK15 AK16

4F205 AA41 AB25 AD16 AM29 HA12 HA33 HB01 HC05 HF05 HK04 HK31

4J002 AA001 AA002 AC011 AC031 AC061 AC071 AC081 AC091 AC111 BB002 BB021 BB032 BB051 BB061 BB111 BB151 BB171 BB231 BB241 BC021

BD031 BD101 BD121 BD141 BD151 BE021 BE061 BE062 BF021 BF051

BG011 BG051 BG091 BK001 BN151 CC032 CD001 CF061 CF071 CF081 CF211 CG001 CH071 CH091 CK021 CL001 CL002 CL062 CM022 CM041

CM042 CN011 CN012 CN031 CP031 DA016 DA066 DL006 DM006 FA042

FA046 FD012 FD016 GP00 GQ00 HA01